



TITLE:

Low-dimensional atomic-scale multiferroics  
in nonmagnetic ferroelectrics from lattice  
defects engineering( Abstract\_要旨 )

AUTHOR(S):

Xu, Tao

---

CITATION:

Xu, Tao. Low-dimensional atomic-scale multiferroics in nonmagnetic ferroelectrics from  
lattice defects engineering. 京都大学, 2017, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2017-09-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k20699>

RIGHT:

許諾条件により本文は2018-09-01に公開

( 続紙 1 )

京都大学	博士 ( 工 学 )	氏名	徐 涛			
論文題目	Low-dimensional atomic-scale multiferroics in nonmagnetic ferroelectrics from lattice defects engineering (格子欠陥の工学利用による非磁性強誘電体中の低次元原子スケールマルチフェロイクス)					
(論文内容の要旨)						
<p>マルチフェロイクスは強誘電性と強磁性を同時に示す材料であり、その自発的な電気分極・磁気モーメントを利用して、電子デバイスのメモリーやマイクロ・ナノ機械デバイス等の微小機器への利用が期待されている。とくに、高機能化・高集積化のための部材寸法縮小を目的としたナノメートルスケールのマルチフェロイクスが注目されている。ナノスケールのマルチフェロイクスでは表面の影響が支配的となり、本特性が消失する臨界サイズが存在する。すなわち、下限界寸法以下の微小なマルチフェロイクスを作製することができない。一方、強誘電体中に多数存在する格子欠陥は、完全結晶とは異なる原子配列・電子状態を有することから、本来材料が持ちえない磁性の発現サイトとなる可能性がある。すなわち、格子欠陥が強誘電性と磁性を併せ持つ微小なマルチフェロイクスとして振る舞う可能性がある。本論文は、強誘電体中の格子欠陥に着目し、同部での磁性発現とマルチフェロイクス特性に着目して行った第一原理解析による研究をまとめたものであり、7章からなっている。</p> <p>第1章は緒論であり、研究の背景および本論文の目的を述べている。まず、マルチフェロイクス特性とその電気磁気効果の基礎を示している。とくに、材料表面部が強誘電性や磁性を抑制することを指摘した上で、臨界寸法が存在する点について説明している。一方、代表的な強誘電材料である <math>\text{PbTiO}_3</math> などは非磁性材料であるが、材料内部に存在する原子空孔や転位などの格子欠陥部では局所的に磁性が発現する可能性があることを指摘し、本論文の目的である格子欠陥誘起のマルチフェロイクスについて説明している。</p> <p>第2章は、面内ひずみを受ける強誘電体 <math>\text{PbTiO}_3</math> 中の酸素空孔について検討している。無負荷時には非磁性であった酸素空孔が、面内ひずみ負荷によって同空孔部に局在化した磁気モーメントが現れることを発見している。これにより、酸素空孔が原子スケールの0次元マルチフェロイクスと見なせることを指摘している。さらに、この発現した磁気モーメントは、<math>\text{PbTiO}_3</math> が有する自発分極と相互作用することを示しており、非線形な電気磁気効果を有することを示している。</p> <p>第3章は、<math>\text{PbTiO}_3</math> 中の刃状転位芯について検討している。転位芯部には局在化した磁気モーメントが転位線に沿って発現することを発見している。これにより、転位芯は強誘電性と磁性を示す1次元のマルチフェロイクスとなることを指摘している。転位芯部に発現する磁気モーメントは、母材の分極方向に応じて反強磁性・強磁性・非磁性へと磁気相転移することを示してお</p>						

京都大学	博士（工学）	氏名	徐 涛
<p>り、非線形な電気磁気効果が現れることを指摘している。さらに、こうした磁性の発現は転位芯での化学量論比のズレにより、余剰電子が生じたためであることを明らかにしている。</p> <p>第4章は、<math>\text{PbTiO}_3</math>内の酸素空孔とドメイン壁との相互作用について検討している。酸素空孔、ドメイン壁ともに、単独で孤立して存在する場合には非磁性であるが、両者が会合することで同会合部に局在化した磁気モーメントが現れることを見出している。また、形成エネルギーを評価することで、ドメイン壁は酸素空孔をトラップする性質があることを示し、ドメイン壁部には多数の酸素空孔が凝集する可能性を指摘している。酸素空孔が凝集したドメイン壁はそれ自体が磁性の発現サイトとなることから、面状のマルチフェロイクスとなり得ることを指摘している。</p> <p>第5章は、ペロブスカイト型酸化物中に特有の界面である Aurivillius 型界面について検討している。Aurivillius 界面部では完全結晶とは異なる結合状態を形成しており、特異な強誘電特性を示すことを指摘している。また、界面構造の組成不整合によって磁性が発現し、層状のマルチフェロイクスとなることを見出している。さらに、同界面に関する電子状態解析から、界面部のみに p 型の導電性が生じることも指摘している。これらの界面特性は強誘電体母材の自発分極方向に依存しており、強い電気磁気効果を示す点についても指摘している。</p> <p>第6章は、非磁性常誘電体 <math>\text{SrTiO}_3</math> 中の Ti アンチサイト欠陥について検討している。アンチサイト欠陥は非中心対称な原子構造であり、同部に電気双極子を形成する。また、アンチサイト欠陥は組成不整合に伴う余剰電子を有し、磁気モーメントが発現することを示している。これらの結果から、アンチサイト欠陥は強誘電性と磁性を同時に発現し、欠陥自体が単原子スケールのマルチフェロイクスと見なせることを指摘している。さらに、エネルギー的観点からアンチサイト欠陥同士は互いに凝集する性質があることを明らかにし、クラスターを形成することで特異なマルチフェロイクス性を示すことも明らかにしている。</p> <p>第7章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。</p>			

## (論文審査の結果の要旨)

本論文は、非磁性材料中の格子欠陥が、原子スケールかつ低次元形状を有する磁性強誘電体(マルチフェロイクス)となることを明らかにすることを目的とした研究の成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

(1) 面内ひずみを受ける強誘電体  $\text{PbTiO}_3$  中の酸素空孔に対する第一原理解析を行い、面内ひずみによって酸素空孔部に局在化した磁気モーメントが現れ、0次元のマルチフェロイクスとなることを見出した。さらに、この発現した磁気モーメントが、 $\text{PbTiO}_3$  が有する自発分極と相互作用することを示した。

(2)  $\text{PbTiO}_3$  中の刃状転位芯に対する第一原理解析を行い、転位芯部に線状の磁気モーメントが発現し、同部が1次元のマルチフェロイクスとなることを見出した。また、この磁性発現にともない、転位芯部には電気磁気効果が現れることを示した。

(3)  $\text{PbTiO}_3$  内の酸素空孔とドメイン壁との相互作用に関する解析を実施し、両者が会合することで同部に磁気モーメントが現れることを見出した。また、ドメイン壁は酸素空孔をトラップすることを示し、面状のマルチフェロイクスとなり得ることを指摘した。

(4) ペロブスカイト型酸化物中に特有の界面である Aurivillius 型界面について解析を行い、同界面部に磁性が発現し、層状のマルチフェロイクスとなることを見出した。また、電子状態解析により、この磁性発現は界面原子構造による化学量論比の不整合によるものであることを示した。

(5) 非磁性常誘電体  $\text{SrTiO}_3$  中のアンチサイト欠陥に対する解析を実施し、同欠陥に強誘電性と磁性が発現し、単原子スケールのマルチフェロイクスとなることを見出した。また、アンチサイト欠陥は互いに凝集することでクラスターを形成し、特異なマルチフェロイクス性を示すことを明らかにした。

以上のように、本論文は、第一原理解析により非磁性体中の格子欠陥が原子スケールの低次元マルチフェロイクスとなることを明らかにしたものであり、学術上、實際上、寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成29年7月31日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

要旨公開可能日： 年 月 日以降